

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/EP05/002439

International filing date: 08 March 2005 (08.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: DE  
Number: 10 2004 011 522.2  
Filing date: 08 March 2004 (08.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 03 June 2005 (03.06.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND****Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 10 2004 011 522.2  
**Anmeldetag:** 08. März 2004  
**Anmelder/Inhaber:** Chemetall GmbH,  
60487 Frankfurt/DE  
**Bezeichnung:** Leitsalze für Lithiumionenbatterien  
und deren Herstellung  
**IPC:** C 07 F, H 01 M

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 28. April 2005  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
**Der Präsident**  
Im Auftrag

Faust

### Leitsalze für Lithiumionenbatterien und deren Herstellung

Die Erfindung betrifft Lithium-Boratkomplexsalze, deren Herstellung und deren Verwendung als Elektrolyte in galvanischen Zellen bzw. Leitsalze in Lithiumionenbatterien.

- 5 Mobile elektronische Geräte benötigen zur unabhängigen Stromversorgung immer leistungsfähigere, wiederaufladbare Batterien. Neben Nickel/Cadmium- und Nickel/Metallhydrid-Akkumulatoren sind dafür wiederaufladbare Lithiumbatterien geeignet, die im Vergleich zu den Nickelbatterien eine wesentlich höhere Energiedichte aufweisen. Die marktüblichen Systeme weisen eine
- 10 Klemmenspannung von ca. 3 V auf; dieses Potenzial hat zur Folge, dass wasserbasierte Elektrolytsysteme in Lithiumbatterien nicht verwendbar sind. Statt dessen kommen in Flüssigsystemen nichtwässrige, zumeist organische Elektrolyte (das sind Lösungen eines Lithiumsalzes in organischen Lösungsmitteln, wie Carbonate, Ether oder Ester) zum Einsatz.
- 15 Im derzeitig dominierenden Batteriedesign – Lithiumionenbatterien mit Flüssigelektrolyten – wird als Leitsalz praktisch ausschließlich Lithiumhexafluorophosphat ( $\text{LiPF}_6$ ) verwendet. Dieses Salz besitzt die notwendigen Voraussetzungen für einen Einsatz in Hochenergiezellen, d. h. es ist in aprotischen Lösungsmitteln gut löslich, es führt zu Elektrolyten mit hohen
- 20 Leitfähigkeiten und es weist ein hohes Maß an elektrochemischer Stabilität auf. Oxidative Zersetzung tritt erst bei Potentialen  $> \text{ca. } 4,5 \text{ V}$  auf.  $\text{LiPF}_6$  hat jedoch schwerwiegende Nachteile, die hauptsächlich auf seine mangelnde thermische Stabilität (Zersetzung oberhalb ca.  $130^\circ\text{C}$ ) zurückgeführt werden können. Außerdem wird beim Kontakt mit Feuchtigkeit ätzender und giftiger
- 25 Fluorwasserstoff freigesetzt, der zum einen die Handhabung erschwert und zum anderen Batteriebestandteile, z. B. die Kathode, angreift und schädigt.

Vor diesem Hintergrund gibt es intensive Bemühungen, alternative Leitsalze zu entwickeln. Als solche wurden vor allem Lithiumsalze mit perfluorierten organischen Resten geprüft. Dabei handelt es sich um das Lithiumtrifluormethansulfonat ("Li-Triflat"), Lithiumimide (Lithium-bis(perfluoralkylsulfonyl)imide) sowie Lithiummethide (Lithium-tris(perfluoralkylsulfonyl)methide). Alle diese Salze erfordern relativ aufwendige Herstellverfahren, sind deshalb relativ teuer und haben andere Nachteile wie Korrosivität gegenüber Aluminium oder schlechte Leitfähigkeit.

Als weitere Verbindungsklasse für die Verwendung als Leitsalz in wiederaufladbaren Lithiumbatterien wurden Lithiumorganoborate untersucht. Wegen deren geringer Oxidationsstabilität und sicherheitstechnischer Bedenken bei der Handhabung von Triorganoboranen scheiden sie jedoch für kommerzielle Systeme aus.

Einen wesentlichen Fortschritt stellen die in EP 698301 für die Verwendung in galvanischen Zellen vorgeschlagenen Lithiumkomplexsalze des Typs  $ABL_2$  (wobei A Lithium oder ein quartäres Ammoniumion, B Bor und L einen zweizähnigen Liganden, der über zwei Sauerstoffatome an das Boratom gebunden ist, bedeutet) dar. Die vorgeschlagenen Salze, deren Liganden wenigstens einen aromatischen Rest enthalten, weisen jedoch nur dann eine ausreichende elektrochemische Stabilität auf, wenn der Aromat mit elektronenziehenden Resten, typischerweise Fluor, substituiert ist oder wenigstens ein Stickstoffatom im Ring aufweist. Solche Chelatverbindungen sind kommerziell nicht verfügbar und nur mit hohen Kosten herzustellen. Die vorgeschlagenen Produkte konnten sich deshalb nicht am Markt durchsetzen.

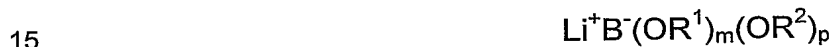
Ganz ähnliche Borverbindungen werden in EP 907217 als Bestandteile in organischen Elektrolytzellen vorgeschlagen. Als Bor-enthaltendes Leitsalz werden Verbindungen der allgemeinen Formel  $LiBXX'$  vorgeschlagen, wobei die Liganden X und X' gleich oder verschieden sein können und jeder Ligand eine

- 3 -

elektronenziehende, Sauerstoff enthaltende Gruppe, die zum Boratom bindet, enthält. Die aufgeführten Verbindungen (Lithium-bordisalicylat und ein spezielles Imidsalz) weisen jedoch die bereits oben erwähnten Nachteile auf.

Das in der DE 19829030 erstmals beschriebene Lithium bis(oxalato)borat (LiBOB) ist das erste für die Verwendung als Elektrolyt beschriebene borzentrierte Komplexsalz, das als Chelatkomponente eine Dicarbonsäure (in diesem Fall Oxalsäure) verwendet. Die Verbindung ist einfach herstellbar, ungiftig und elektrochemisch bis etwa 4,5 V stabil, was ihre Verwendung in Lithiumionenbatterien ermöglicht. Nachteilig ist jedoch, dass sie in neuen Batteriesystemen mit Zellspannungen > 3 V kaum eingesetzt werden kann. Für derartige elektrochemische Speicher werden Salze mit Stabilitäten  $\geq$  ca. 5 V benötigt. Weiterhin nachteilig ist, dass Lithium-bis(oxalato)borat keine strukturellen Variationsmöglichkeiten zulässt, ohne das Grundgerüst zu zerstören.

In der EP 1035612 werden Additive der Formel



genannt,

mit m und p = 0, 1, 2, 3 oder 4, wobei m + p = 4 und

R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gleich oder verschieden und gegebenenfalls durch eine Einfach- oder Doppelbindung direkt miteinander verbunden sind, jeweils einzeln oder gemeinsam die Bedeutung einer aromatischen oder aliphatischen Carbon- oder Sulfonsäure haben, oder jeweils einzeln oder gemeinsam die Bedeutung eines aromatischen Rings aus der Gruppe Phenyl, Naphthyl, Anthracenyl oder Phenanthrenyl haben, der unsubstituiert oder ein- bis vierfach durch A oder Hal substituiert sein kann, haben, oder jeweils einzeln oder gemeinsam die Bedeutung eines heterocyclischen aromatischen Rings aus der Gruppe Pyridyl, Pyrazyl oder Bipyridyl, der unsubstituiert oder ein- bis dreifach durch A oder Hal substituiert sein kann, haben, oder

- 4 -

jeweils einzeln oder gemeinsam die Bedeutung einer aromatischen Hydroxysäure aus der Gruppe aromatischer Hydroxy-Carbonsäuren oder aromatischer Hydroxy-Sulfonsäuren, der unsubstituiert oder ein- bis vierfach durch A oder Hal substituiert sein kann, haben, und

Hal = F, Cl oder Br, und

A = Alkylrest mit 1 bis 6 C-Atomen, der ein- bis dreifach halogeniert sein kann.

5

Als besonders bevorzugte Additive sind Lithium-bis[1,2-benzendiolato-(2-)O,O']borat(1-), Lithium-bis[3-fluoro-1,2-benzendiolato(2-)O,O']borat(1-), Lithium-bis[2,3-naphthalindiolato(2-)O,O']borat(1-), Lithium-bis[2,2'-biphenyldiolato(2-)O,O']borat(1-), Lithium-bis[salicylato(2-)O,O']borat(1-), Lithium-bis[2-olato-benzensulfonato(2-)O,O']borat(1-), Lithium-bis[5-fluoro-2-olato-benzensulfonato(2-)O,O']borat, Lithiumphenolat und Lithium-2,2-biphenolat zu nennen. Dies sind alles *symmetrische* Lithiumchelatorborate vom Typ Li[BL<sub>2</sub>].

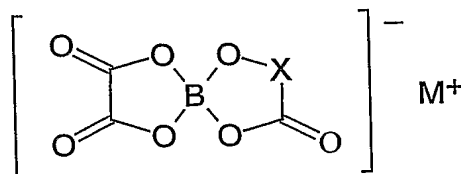
10

Als eine elektrochemisch besonders stabile einfache Lithium-(chelato)boratverbindung wurde von C. Angell das Lithium-bis(malonato)borat beschrieben, das ein elektrochemisches Fenster bis 5 V aufweisen soll. Die betrachtete Verbindung hat zum Nachteil, dass sie in den üblichen Batterielösungsmitteln praktisch unlöslich ist (z. B. nur 0,08 molar in Propylencarbonat), so dass es lediglich in DMSO und ähnlichen für Batterien prohibitiven Lösungsmitteln gelöst und charakterisiert werden kann (Wu Xu und C. Austen Angell, Electrochem. Solid-State Lett. 4, E1 – E4, 2001).

20

In DE 10108592 werden gemischte Borchelatkomplexe der allgemeinen Formel

25



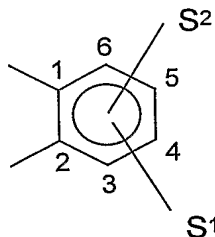
beschrieben, mit

- 5 -

entweder  $X = -C(R^1R^2)-$  oder  $-C(R^1R^2)-C(=O)-$ , wobei

$R^1, R^2$  = unabhängig voneinander H, Alkyl (mit 1 bis 5 C-Atomen), Aryl, Silyl oder ein Polymer sind, und einer der Alkylreste  $R^1$  oder  $R^2$  mit einem weiteren Chelatoboratrest verbunden sein kann,

5 oder  $X = 1,2\text{-Aryl}$ , mit bis zu 2 Substituenten S in den Positionen 3 bis 6



10 wobei  $S^1, S^2$  = unabhängig voneinander Alkyl (mit 1 bis 5 C-Atomen), Fluor oder Polymer sind,

sowie  $M^+ = Li^+, Na^+, K^+, Rb^+, Cs^+$  oder  $[(R^3R^4R^5R^6)N]^+$  oder  $H^+$  ist,

mit  $R^3, R^4, R^5, R^6$  = unabhängig voneinander H oder Alkyl mit bevorzugt 1 bis 4 C-Atomen.

15 Nachteilig an diesen Verbindungen ist deren häufig unbefriedigende Löslichkeit in organischen Lösemitteln wie z.B. Propylencarbonat. Deshalb ist die elektrische Leitfähigkeit solcher Lösungen in der Regel geringer als diejenige etablierter Lithium-Salze (wie z.B.  $LiPF_6$  oder  $LiBOB$ ).

20 Aus diesem Grunde sind Flüssigelektrolyte, welche ausschließlich eines der in DE 10108592 offengelegten gemischten Borchelatkomplexsalze enthalten, für leistungsstarke Hochleistungsbatterien nicht einsetzbar.

Auch ist die Synthese, wie sie in DE 10108592 sowie DE 10108608 beschrieben wird, nicht frei von Nachteilen: bei der Herstellung von gemischten Salzen, ausgehend von einem oxidischen Borrohstoff, beispielsweise Borsäure oder

- 6 -

Boroxid und zwei unterschiedlichen Komplexligenanden  $L^1$  und  $L^2$  im Molverhältnis 1 : 1 : 1 entsteht nämlich nicht nur das gewünschte gemischte Komplexsalz, sondern es bilden sich auch die *homo*-Verbindungen  $[BL^1_2]^-$  und  $[BL^2_2]^-$ . In DE 10108608 werden folgende Beispiele genannt:

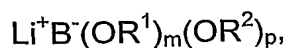
$L_1$	Ausgangsstoff $L_2$	Borverb.	Molverh.	Anteil der Komplexsalze nach $^{11}\text{B-NMR}$			Beispiel aus DE 10108608
				$[BL^1L^2]^-$	$[BL^1_2]^-$	$[BL^2_2]^-$	
Oxal- säure	Malon- säure	Borsäure	1 : 1 : 1	71 %	11 %	17 %	5
Oxal- säure	Milch- säure	Borsäure	1 : 1 : 1	95 %	2 %	3 %	6
Oxal- säure	Salicyl- säure	Borsäure	1 : 1 : 1	77 %	10 %	13 %	2*

5 \* DE 10108592

Die unerwünschten *homo*-Verbindungen haben unterschiedliche physikalisch-chemische Eigenschaften, speziell eine von der gemischten Verbindung verschiedene elektrochemische Stabilität; sie müssen deshalb durch Umkristallisation oder ein ähnliches Reinigungsverfahren abgetrennt werden, was relativ aufwändig ist.

Auch die WO 01/99209 legt die Herstellung gemischter Lithiumboratsalze wie Lithium(malonatooxalato)borat (Beispiele 6 und 7) offen. Es werden zwei Synthesemöglichkeiten beschrieben, die beide als Hauptprodukt das gewünschte Salz ergeben, aber Verunreinigungen durch *homo*-Komplexverbindungen lassen sich nicht vermeiden (Beispiel 6: 4,5 % Lithium bis(oxalato)borat).

In der EP 1095942 werden Komplexsalze der Formel



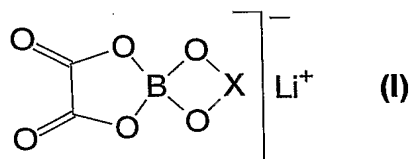
beschrieben (zur Bedeutung von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $m$  und  $p$  siehe oben bei EP 1035612). Sie dienen als Leitsalze in Elektrolyten für elektrochemische Zellen. Ebenso können diese in Anteilen zwischen 1 und 99 % in Kombination mit anderen Leitsalzen verwendet werden. Geeignet sind Leitsalze aus der Gruppe  $\text{LiPF}_6$ ,

- 7 -

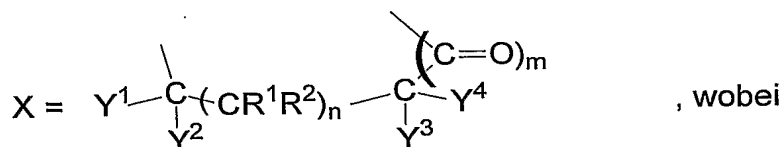
$\text{LiBF}_4$ ,  $\text{LiClO}_4$ ,  $\text{LiAsF}_6$ ,  $\text{LiCF}_3\text{SO}_3$ ,  $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$  oder  $\text{LiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$  und deren Mischungen. Dies sind alles fluorierte Leitsalze.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, die Nachteile des Standes der Technik zu überwinden und insbesondere fluorfreie, einfach und preiswert herstellbare Leitsalze für Lithiumionenbatterien zu finden und deren Synthese aufzuzeigen. Weiterhin sollen die Leitsalze an die material- und anwendungstechnischen Eigenschaften angepasst werden können und eine Formier- und Überladeschutzfunktion aufweisen.

Die Aufgabe wird dadurch gelöst, dass Salzgemische, enthaltend Lithium bis(oxalato)borat („LiBOB“) sowie gemischte Lithiumboratsalze vom Typ



als Leitsalz eingesetzt werden, wobei der Anteil der Verbindung (I) im Salzgemisch 0,01 bis 20 mol-% beträgt. X in Formel (I) ist eine mit zwei Sauerstoffatomen zum Bor verbundene Brücke, die ausgewählt ist aus



- Y<sup>1</sup> und Y<sup>2</sup> zusammen = O bedeuten, m = 1, n = 0 und Y<sup>3</sup> und Y<sup>4</sup> unabhängig voneinander H oder ein Alkylrest mit 1 bis 5 C-Atomen sind, oder
- Y<sup>1</sup>, Y<sup>2</sup>, Y<sup>3</sup>, Y<sup>4</sup> jeweils unabhängig voneinander OR (mit R = Alkylrest mit 1 bis 5 C-Atomen), oder H oder ein Alkylrest mit 1 bis 5 C-Atomen sind, und wobei m = 0 oder 1, n = 0 oder 1 sind, oder

- $Y^2$  und  $Y^3$  Glieder eines 5-oder 6-gliedrigen aromatischen oder heteroaromatischen Ringes (mit N, O oder S als Heteroelement) sind, der gegebenenfalls mit Alkyl, Alkoxy, Carboxy oder Nitril substituiert sein kann, wobei  $Y^1$  und  $Y^4$  entfallen und  $n = 0$ ,  $m = 0$  oder  $1$  sind.

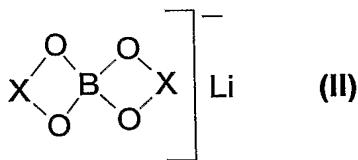
- 5 Diese neuen, fluorfreien Stoffgemische können beispielsweise analog einem in der DE 10108592 beschriebenen Herstellverfahren hergestellt werden. Dabei muss von der  $1 : 1 : 1 : 1$  (Borverbindung (z.B. Borsäure) / Oxalsäure / Chelatbildner  $L^2$  / Lithiumverbindung)-Stöchiometrie in der Weise abgewichen
- 10 wird, dass vom Chelatbildner  $L^2$  höchstens 20 mol-%, bezogen auf Oxalsäure, eingesetzt werden. Das Molverhältnis der eingesetzten Stoffe (Borverbindung / Gemisch aus Oxalsäure und Chelatbildner  $L^2$  / Lithiumverbindung) lautet  $1 : 2 : 1$ , wobei das Gemisch aus Oxalsäure und Chelatbildner  $L^2$  maximal 20 mol-% Chelatbildner  $L^2$  enthält.  $L^2$  ist dabei z.B. eine Dicarbonsäure (nicht Oxalsäure), Hydroxycarbonsäure oder Salicylsäure (welche auch maximal zweifach
- 15 substituiert sein kann). Weitere Möglichkeiten für den Chelatbildner  $L^2$  sind weiter unten bei der Beschreibung des Verbindungsteils X aufgeführt.

- Die Umsetzung erfolgt bevorzugt in der Weise, dass die Rohstoffkomponenten in einem zur azeotropen Wasserentfernung geeigneten Medium (z. B. Toluol, Xylol, Methylcyclohexan, perfluorierte Kohlenwasserstoffe mit mehr als 6 C-Atomen)
- 20 suspendiert werden und das Wasser in bekannter Weise azeotrop entfernt wird.

- Es ist auch möglich, die Synthese in wässriger Lösung vorzunehmen. Dabei werden die Komponenten in beliebiger Reihenfolge in Wasser eingetragen und unter Rühren, vorzugsweise bei vermindertem Druck, eingedampft. Nach Entfernung der Hauptmenge Wasser bildet sich ein festes Reaktionsprodukt, das
- 25 je nach spezifischen Produkteigenschaften bei Temperaturen zwischen 100 und 180 °C und vermindertem Druck (z. B. 10 mbar) endgetrocknet wird. Außer Wasser eignen sich auch Alkohole und andere polare organische Lösungsmittel als Reaktionsmedien.

Schließlich kann die Produktherstellung auch ohne Zugabe irgendeines Lösungsmittels erfolgen, d. h. die handelsüblichen Rohstoffe werden gemischt und dann durch Wärmezufuhr erhitzt und unter vorzugsweise reduziertem Druck entwässert.

- 5 Bei Durchführung des Verfahrens bildet sich ein Gemisch, welches mindestens 80 mol-% LiBOB neben höchstens 20 mol-% des gemischten Lithiumboratsalzes (I) enthält. Überraschenderweise sind in derartigen Synthesemischungen keine nachweisbaren Mengen von der *homo*-Komplexverbindung



- vorhanden. Das erhaltene Leitsalzgemisch hat gegenüber reinem LiBOB den Vorteil, dass bei Überladung eine Zersetzungsreaktion an der Kathode einsetzt, die den Anstieg der Zellspannung verlangsamt. Dadurch können gefährliche  
15 Folgereaktionen des Kathodenmaterials mit Bestandteilen des Elektrolyten vermieden bzw. vermindert werden.

- Bevorzugte Beispiele für den Verbindungsteil X sind formal um zwei OH-Gruppen verminderte 1,3-Dicarbonsäuren, wie Malonsäure und Alkylmalonsäuren (Malonsäure, substituiert mit einer Alkylgruppe mit bevorzugt 1 bis 5 C-Atomen).  
20 (Die zum Bor bindenden O-Atome sind bereits in Formel (I) enthalten, die 1,3 Dicarbonsäuren entsprechen L<sup>2</sup>.)

- Weitere bevorzugte Beispiele für den Verbindungsteil X sind formal um zwei OH-Gruppen verminderte 1,2- oder 1,3-Hydroxycarbonsäuren, wie Glycolsäure oder Milchsäure. (Die 1,2- oder 1,3-Hydroxycarbonsäuren entsprechen L<sup>2</sup>.) Der  
25 Verbindungsteil X kann auch bevorzugt gebildet werden von gesättigten C<sub>2</sub>- oder C<sub>3</sub>-Ketten, was sich formal aus um zwei OH-Gruppen verminderten 1,2- oder 1,3-Diolen ableiten lässt. (Die 1,2- oder 1,3-Diole entsprechen L<sup>2</sup>.)

Weitere bevorzugte Beispiele für den Verbindungsteil X sind formal um zwei OH-Gruppen verminderte 1,2-Bisphenole (wie Brenzcatechin) oder 1,2-Carboxyphenole (wie Salicylsäure) oder aromatische oder heteroaromatische 1,2-Dicarbonsäuren (wie Phthalsäure oder Pyridin-2,3-diol). Die aufgeführten 1,2-Bisphenole, 1,2-Carboxyphenole oder aromatische 1,2-Dicarbonsäuren entsprechen L<sup>2</sup>

Der Gegenstand der Erfindung wird anhand der folgenden Beispiele näher erläutert:

### Beispiel 1:

In einem 250 ml-Rundkolben aus Glas wurden 23,95 g Oxalsäure-Dihydrat, 6,81 g Borsäure und 1,38 g Salicylsäure (10 mol %, bezogen auf Borsäure) in 50 ml Wasser suspendiert und unter Rühren mit 4,06 g Lithiumcarbonat versetzt. Nach Abklingen der Gasentwicklung (CO<sub>2</sub> aus Neutralisationsreaktion) wurde die Suspension 1 Stunde bei einer Ölbadtemperatur von 115 °C refluxiert. Dabei bildete sich eine klare, farblose Lösung. Diese Lösung wurde am Rotationsverdampfer bei einer Ölbadtemperatur von 125 °C im Vakuum totaleingedampft.

Der zurückbleibende Feststoff wurde unter Schutzgasatmosphäre (Argon) mit einem Nickelspatel vorzerkleinert und in einem Porzellanmörser fein zerrieben. Das Pulver wurde dann wieder in einen Glasrundkolben gefüllt und am Rotationsverdampfer bei 150 °C und zuletzt 13 mbar endgetrocknet.

Ausbeute : 17,3 g (88 % der Theorie, Verluste durch Verbackungen im Glaskolben)

Analyse: Lithium 3,60 % (soll: 3,54 %)

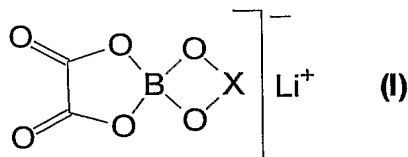
Reinheit: Im <sup>11</sup>B NMR-Spektrum (Lösungsmittel THF/C<sub>6</sub>D<sub>6</sub>) lässt sich die *homo*-Verbindung Lithium-bis(salicylato)borat (Literaturverschiebung 4,0 ppm) nicht

- 11 -

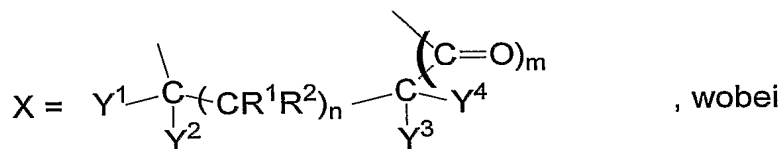
nachweisen, erkennbar sind lediglich die Signale der erwarteten Produkte Lithium bis(oxalato)borat (7,6 ppm), abgekürzt LiBOB, und des gemischten Salzes Lithium (salicylato, oxalato)borat (5,6 ppm), abgekürzt LiSOB, vgl. Figur 1.

**Patentansprüche**

1. Leitsalz, enthaltend Lithium bis(oxalato)borat (LiBOB) und gemischte Lithiumboratsalze vom Typ



wobei der Anteil der Verbindung (I) im Leitsalz 0,01 bis 20 mol-% beträgt und X in Formel (I) eine mit zwei Sauerstoffatomen zum Bor verbundene Brücke ist, die ausgewählt ist aus

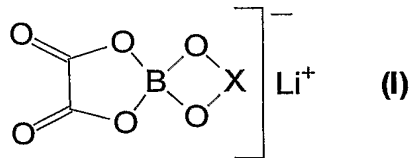


- $\text{Y}^1$  und  $\text{Y}^2$  zusammen = O bedeuten,  $m = 1$ ,  $n = 0$  und  $\text{Y}^3$  und  $\text{Y}^4$  unabhängig voneinander H oder ein Alkylrest mit 1 bis 5 C-Atomen sind, oder
  - $\text{Y}^1$ ,  $\text{Y}^2$ ,  $\text{Y}^3$ ,  $\text{Y}^4$  jeweils unabhängig voneinander OR (mit R = Alkylrest mit 1 bis 5 C-Atomen), oder H oder ein Alkylrest mit 1 bis 5 C-Atomen sind, und wobei  $m = 0$  oder 1,  $n = 0$  oder 1 sind, oder
  - $\text{Y}^2$  und  $\text{Y}^3$  Glieder eines 5-oder 6-gliedrigen aromatischen oder heteroaromatischen Ringes (mit N, O oder S als Heteroelement) sind, der gegebenenfalls mit Alkyl, Alkoxy, Carboxy oder Nitril substituiert sein kann, wobei  $\text{Y}^1$  und  $\text{Y}^4$  entfallen und  $n = 0$ ,  $m = 0$  oder 1 sind.
2. Leitsalz nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Verbindungsteil X aus formal um zwei OH-Gruppen verminderte 1,3-Dicarbonsäuren gebildet wird.

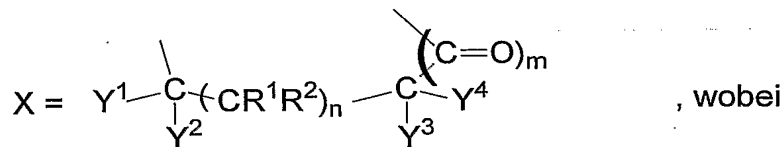
3. Leitsalz nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass die 1,3-Dicarbonsäure Malonsäure oder eine Alkylmalonsäure ist.
4. Leitsalz nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Verbindungsteil X aus formal um zwei OH-Gruppen verminderte 1,2- oder 1,3-Hydroxycarbonsäuren gebildet wird.  
5
5. Leitsalz nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die 1,2-Hydroxycarbonsäure beziehungsweise 1,3-Hydroxycarbonsäure Glycolsäure oder Milchsäure ist.
6. Leitsalz nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Verbindungsteil X gebildet wird von gesättigten C<sub>2</sub>- oder C<sub>3</sub>-Ketten.  
10
7. Leitsalz nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Verbindungsteil X aus formal um zwei OH-Gruppen verminderte 1,2-Bisphenole oder 1,2-Carboxyphenole (wie Salicylsäure) oder aromatische 1,2-Dicarbonsäuren (wie Phthalsäure) oder Pyridin-2,3-diol gebildet wird.
8. Leitsalz nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass das 1,2-Bisphenol Brenzcatechin, das 1,2-Carboxyphenol Salicylsäure und die 1,2-Dicarbonsäure Phthalsäure ist.  
15

## Zusammenfassung

Beschrieben wird ein Leitsalz, enthaltend Lithium bis(oxalato)borat (LiBOB) und gemischte Lithiumboratsalze vom Typ



wobei der Anteil der Verbindung (I) im Leitsalz 0,01 bis 20 mol-% beträgt und X in Formel (I) eine mit zwei Sauerstoffatomen zum Bor verbundene Brücke ist, die ausgewählt ist aus

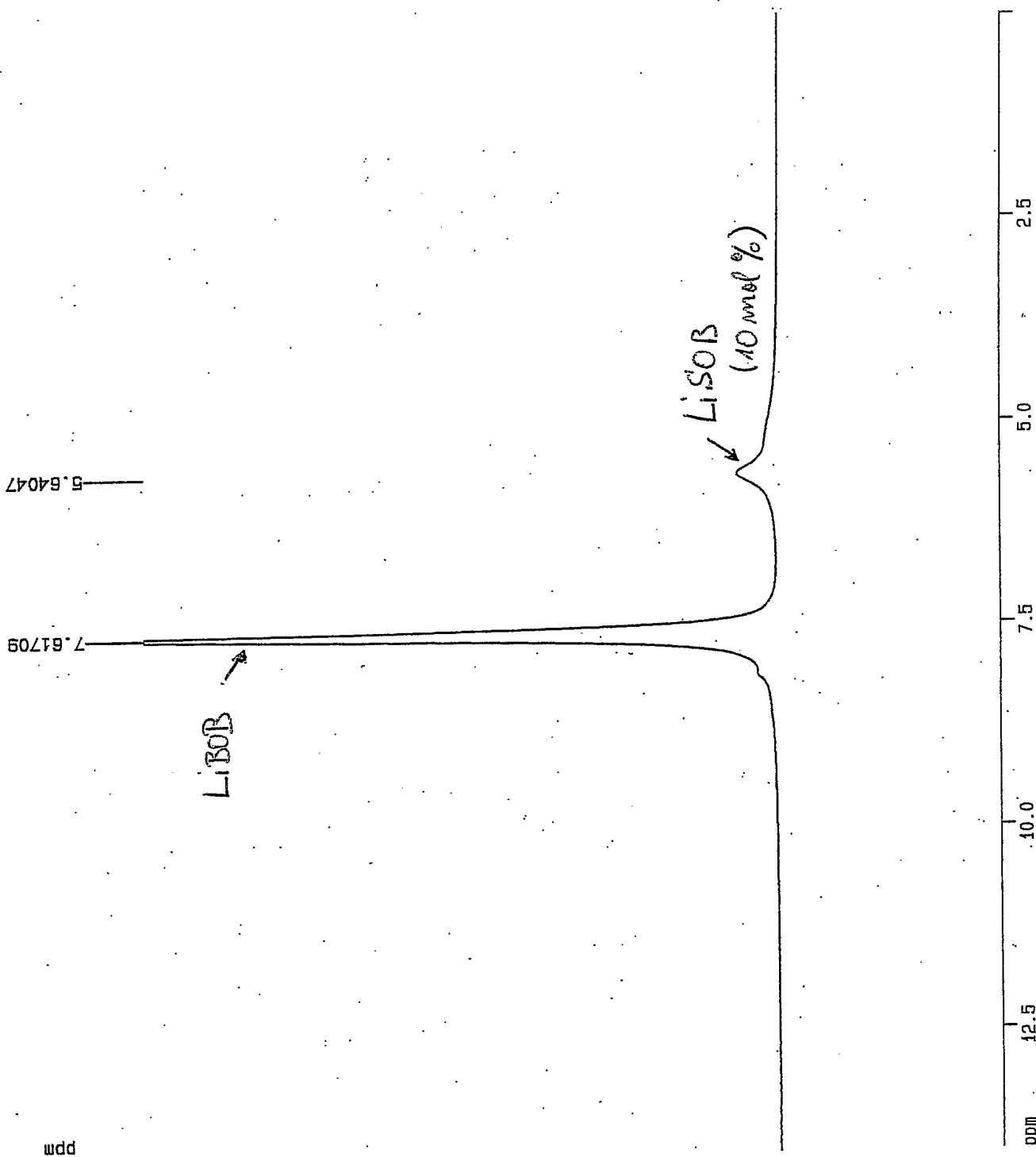


- Y<sup>1</sup> und Y<sup>2</sup> zusammen = O bedeuten, m = 1, n = 0 und Y<sup>3</sup> und Y<sup>4</sup> unabhängig voneinander H oder ein Alkylrest mit 1 bis 5 C-Atomen sind, oder

-  $Y^1, Y^2, Y^3, Y^4$  jeweils unabhängig voneinander OR (mit R = Alkylrest mit 1 bis 5 C-Atomen), oder H oder ein Alkylrest mit 1 bis 5 C-Atomen sind, und wobei  $m = 0$  oder 1,  $n = 0$  oder 1 sind, oder

Y<sup>2</sup> und Y<sup>3</sup> Glieder eines 5- oder 6-gliedrigen aromatischen oder heteroaromatischen Ringes (mit N, O oder S als Heteroelement) sind, der gegebenenfalls mit Alkyl, Alkoxy, Carboxy oder Nitril substituiert sein kann, wobei

$Y^1$  und  $Y^4$  entfallen und  $n = 0$ ,  $m = 0$  oder  $1$  sind.



1 / 1